

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 6 月 27 日現在

機関番号：14303

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2012～2015

課題番号：24550023

研究課題名(和文) 光サンプリング時間分解イメージング法の開発

研究課題名(英文) Time-resolved imaging utilizing optical sampling

## 研究代表者

永原 哲彦 (NAGAHARA, Tetsuhiko)

京都工芸繊維大学・材料化学系・助教

研究者番号：70390664

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 4,300,000円

研究成果の概要(和文)：時間分解光サンプリングを用いた超高速時間分解イメージング法を開発した。相対的な外乱を極力抑えるために、単一のブレッドボード上で共通の励起レーザーを用いた2台の共振器長可変のモードロックレーザー発振器を構築した。繰返し周波数の高調波を共通のマイクロ波発振器を用いてヘテロダイン周波数変換した後に位相を検出し同期した。同期状態で光強度相関計を用いて測定した結果、自己相関幅 $\sim 70$  fsに対して同程度の相互相関幅を長時間安定に得ることができた。この装置を用いた複雑で高度に集積された分子系のイメージングへの適用を行っている。

研究成果の概要(英文)：An ultrafast optical imaging method utilizing time-resolved optical sampling has been developed. The apparatus was constructed using a twin mode-locked laser oscillator of variable cavity lengths, which share an excitation laser and an optical breadboard, for relative stability against environmental fluctuations. Their relative phase of the pulse repetition frequencies at higher harmonics was detected and locked after heterodyne down-conversion using a common microwave oscillator. An intensity cross-correlation width of  $\sim 70$  fs, which was similar to those of auto-correlations, was obtained for a long time by an optical intensity correlator when locked. Optical imaging of complex molecular systems using the apparatus is under investigation.

研究分野：数物系科学

キーワード：超高速分光 反応動力学

## 1. 研究開始当初の背景

これまで、分子系ダイナミクスの観測は様々な分光学的手法でなされてきたが、時間分解分光法は励起状態分子種のダイナミクスを直接にプローブすることができるすぐれた手法である。複雑かつ高度に集積された分子系において、メソスコピックなサイト依存性とダイナミクスの同時測定が重要と考え、新規な過渡吸収イメージング法の開発を行うことを考えた。

一般に時間分解イメージングでは時間と空間の2つの領域を走査する必要があるので、

場所を走査しながらそれぞれの位置での過渡吸収信号強度の時間変化を測定し、各時刻でのイメージ(像)を再構築する方法、

時刻を走査しながら各時刻での発光イメージを直接に取得する方法、  
の二種類の方法が考えられる。

電気回路による光信号強度の時間分解取り込みが容易であるナノ秒以上の領域では

の方法が、それ以下の超高速時間領域では光学遅延ステージを用いたの方法が一般に使われている。以前に開発を行った「走査型プローブ顕微鏡による時間分解顕微分光法」では、の方法で約100フェムト秒の時間分解能が得られたが、そのダイナミクスを時間分解イメージとして可視化するには数千点以上の場所を走査する必要があり、1時間以上の測定を要する。また最近、光パラメトリック過程を利用した時間分解蛍光イメージングによっての方法を実現したが、これは励起発光種のイメージングに限られるという問題がある。また、バックグラウンドの無い蛍光イメージングとは異なり、過渡吸収イメージングでは微小な透過率の変化を高感度に検出しなければならないという問題点もある。更に、いずれの場合にも、超高速時間領域では光学遅延ステージの機械的移動、ナノ秒以上の領域では電氣的なゲート遅延という互いに異なった方法で遅延

時間を決定する必要がある。

従って、高速に過渡吸収イメージを取得する為には、超高速時間領域~ナノ秒領域で電氣的に自在に時刻と場所を操作しながらイメージ取得する方法の開発が必要となる。

光サンプリング法は過渡吸収を測定するポンプ-プローブ法の一つであるが、1台のレーザの出力からポンプ光とプローブ光を作りその遅延時間を光學的に与えるのではなく、2台の超短パルスレーザ発振器を用いる。2台のパルス周波数を等しくして同期運転させた場合にはその位相差によって決まる遅延時間の信号を得ることができるが、パルス周波数を僅かにずらした非同期運転の場合には、遅延時間を一定の割合(パルス周波数とその僅かな差で決まる)でゆっくりと掃引することもできる。つまり、電氣的に自在に遅延時間を操作可能な優れた方法である(文献1)。また、光学遅延路を機械的に動かす必要がないので光學的距離の変化に伴うプローブ光の広がり(divergence)や重なり(overlap)が原理的に生じないため、測定位置の再現性が非常に良く時間分解イメージングなどに適しており、ピコ秒レーザを用いた非線形CARS顕微鏡への適用なども報告されている(文献2)。

光サンプリング法はレーザ発振器のパルス周波数を制御するので、その制御電気回路のジッタによって時間分解能が悪くなるという問題が考えられるが、そのパルス周波数そのものではなく高次高調波を基準参照発振器に位相ロックすることで、ジッタをサブフェムト秒程度まで低減できることが既に報告されている(文献3)。

(引用文献)

1. P.A. Elzinga et al., Appl. Spectrosc. 41, 2 (1987); P.A. Elzinga et al., Appl. Opt. 26, 4303 (1987).
2. D.J. Jones et al., Rev. Sci. Instrum. 73, 2843 (2002).

3. R.K. Shelton et al., Opt. Lett. 27, 312 (2002).

## 2. 研究の目的

- ・ 2台のサブピコ秒 Ti:Sapphire レーザを組み合わせ、高速に過渡吸収信号を測定し、本手法を用いてサブピコ秒領域で高感度・高速に励起ダイナミックスの測定が可能であることを明らかにする。
- ・ 本手法を時間分解イメージングに適用する。

これまで光サンプリングを用いたイメージングでは、前述の通りピコ秒レーザを用いた CARS 顕微鏡によるイメージングやバルクの時間分解過渡吸収測定が既に報告されているが、サブピコ秒のレーザを用いた時間分解イメージング測定が可能となる点が異なる。従来の時間分解イメージングと比べて高速に遅延時間を走査でき、位置再現性も良いことから、高速に高精度な測定が可能となることが期待される。

## 3. 研究の方法

光サンプリング法は2台の超短パルスレーザ発振器を必要とする。少なくともその1台の共振器長を電気的に可変して、そのパルス周波数（共振器長と光速によって決まる）を変化させる。

2台のレーザのパルス周波数を、その基本波または高次の高調波で位相同期して制御する。制御回路を構成する部品は市販のものと新規に設計する回路を組み合わせる。

研究計画段階での目論見では既設の超短パルスレーザ発振器1台と新規に構築する共振器長可変のもの1台とを組み合わせる予定であったが、その後の検討により2台合わせた新規なレーザシステムを構築することになった。

ポンプ - プロブ型の過渡吸収分光測定系を構築し、次にその時間分解イメージング

への適用を行う。

## 4. 研究成果

本研究では2台のモードロック・チタンサファイアレーザ発振器を同時に使用するが、その位相雑音の多くは励起レーザ由来の雑音、機械的振動や熱変形に由来すると考えられる。これらの問題は、それぞれ別の励起レーザと共に構築された2台を用いるのでは無く共通の励起レーザを使用すること、共通の筐体に2台分のレーザを構築することによって大幅に軽減が可能となる。

そこで温度調整された単一のブレードボード上に共通の励起レーザ（4 W, 532 nm）を用いた2台のレーザ発振器（Laser A, B）を構築し相対的な外乱を極力抑えた（図1）。

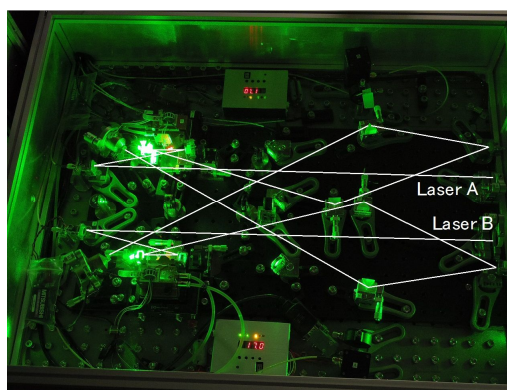


図1. 本研究により構築したレーザ発振器

その共振器長をピエゾ素子によって電気的に可変して繰り返し周波数の相対的な位相の制御を行うが、ジッタを減少させるためにモードロックレーザの繰り返し周波数（約 80 MHz）そのものでは無くマイクロ波領域の高次高調波を用いる。

同期運転可能なレーザ発振器の設計と構築を行い、高速フォトダイオードから得られるそれぞれの繰り返し周波数の～160次の高調波を共通のマイクロ波発振器を用いて低周波数（< 1 MHz）にヘテロダイン周波数変換し、制限増幅器と位相比較器により位相同期させた。この構成では共通のマイクロ波発振器の雑音のほとんどが相殺されることが

期待でき、ヘテロダイン周波数変換によって時間軸が拡大されるので位相検出器に要求されるジッタは軽減され、また超短パルスレーザーの強度揺らぎは制限増幅器によって位相比較器に直接には入力されないため、強度揺らぎが位相同期回路を經由して位相揺らぎに変換される問題 (AM-PM conversion) が大幅に軽減できる。

2 台のレーザーの同期状態は市販の回転ミラー型強度自己相関計を改造した相互相関計を用いて測定した。負帰還の制御帯域が 10 kHz 以下と前述文献(3)のものより狭いにもかかわらず、自己相関幅 ~ 70 fs (半値全幅) に対して同程度の相互相関幅を 30 分以上安定に継続して得ることができた (図 2)。

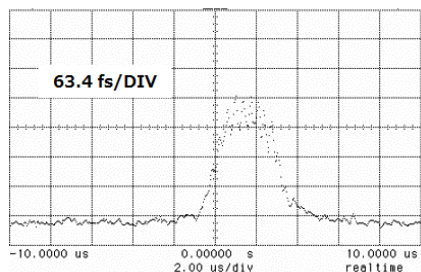


図 2. 位相同期により得られた相互相関波形

現在は、様々な系において本システムを用いた時間分解イメージング測定への適用を行っているところである。

## 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

〔雑誌論文〕(計 0 件)

〔学会発表〕(計 1 件)

永原 哲彦、2 台の超短パルスレーザーによる時間分解光サンプリングシステムの構築、分子科学討論会、2015 年 9 月 16 日 ~ 19 日、東京工業大学 大岡山キャンパス (東京都)

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕

出願状況 (計 0 件)

取得状況 (計 0 件)

〔その他〕

なし

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

永原 哲彦 (NAGAHARA, Tetsuhiko)  
京都工芸繊維大学・材料化学系・助教  
研究者番号: 70390664

### (2) 研究分担者

なし

### (3) 連携研究者

なし